

**SIFAT-SIFAT HIGROTERMA DAN REKAHAN
KOMPOSIT POLIAMIDA 6 DIPERKUATKAN
GENTIAN KACA PENDEK.**

oleh

LOOI CHEE MENG

Tesis yang diserahkan untuk memenuhi keperluan bagi

Ijazah Sarjana Sains

Oktober, 2000

PENGHARGAAN

Saya ingin mengucapkan ribuan terima kasih kepada penyelia projek Professor Zainal Arifin dan penyelia bersama Dr Umaru Semo Ishiaku atas nasihat, bimbingan serta pembetulan skrip; pembantu-pembantu makmal daripada Pusat Pengajian Teknologi Industri, Pusat Pengajian Sains Biologi dan juga Pusat Pengajian Sains Kimia atas kerjasama yang telah diberikan.

Saya juga ingin berterima kasih atas sumbangan bahan-bahan gentian dan plastik poliamida 6 daripada LNP Engineering Plastics Ltd., Seremban, Malaysia; dan Toray Plastics (M) Ltd., Pulau Pinang, Malaysia.

Saya terhutang budi kepada Institut Pengajian Siswazah di atas geran Biasiswa Khas yang diberikan di sepanjang pengajian saya di U.S.M dan juga Prof. Dr-Ing J. Karger-Kocsis di Institute of Composite Materials, University of Kaiserslautern, Germany di atas nasihat dan kemudahan peralatan.

Akhirnya tidak ketinggalan sokongan, dorongan dan juga kesabaran isteri, Ms C.P.Ong, dan keluarga saya telah memainkan peranan yang amat penting dalam menjayakan pengajian ini.

Looi Chee Meng
Pusat Pengajian Teknologi Industri
Universiti Sains Malaysia
Pulau Pinang
Malaysia

KANDUNGAN

Tajuk	i
Penghargaan	ii
Kandungan	iii
Senarai Jadual	vii
Senarai Rajah	ix
Singkatan	xv
Abstrak	xvii
Abstract	xix
Bab 1: Pengenalan kepada Bahan Komposit	1
1.1 Pengenalan	1
1.1.1 Definisi	1
1.1.2 Klasifikasi	2
1.2 Plastik diperkuat gentian	3
1.2.1 Matrik	4
1.2.2 Fasa Penguatan	7
1.2.2.1 Gentian kaca	9
1.2.2.2 Gentian-gentian lain	10
1.2.2.3 Antaramuka gentian-matrik	11
1.3 Penuaan higroterma plastik diperkuatkan gentian	13
1.3.1 Sifat higroterma plastik diperkuat gentian	15
1.4 Termoplastik diperkuat gentian pendek	17
1.4.1 Pemprosesan plastik diperkuat gentian pendek	18
1.4.2 Pengacuanan suntikan	20

1.4.3 Sifat-sifat mekanik plastik diperkuat gentian pendek.	23
1.5 Poliamida	24
1.6 Objektif kajian	25
Bab 2: Eksperimen	27
2.1 Bahan-bahan	27
2.1.1 Bahan matrik	27
2.1.2 Bahan penguatan	27
2.2 Pemprosesan	29
2.2.1 Penyediaan granul poliamida 6	29
2.2.2 Pengacuan suntikan granul-granul poliamida 6 diperkuat gentian	31
2.3 Pencirian sampel	33
2.3.1 Penyediaan spesimen	33
2.3.2 Penentuan kandungan pecahan isipadu gentian	33
2.3.3 Penentuan taburan panjang gentian	34
2.3.4 Pemerhatian orientasi gentian dan morfologi kulit-teras	35
2.3.5 Pemerhatian permukaan rekahan – Fraktografi.	36
2.3.6 Ujian DSC	37
2.4 Ujian Regangan Padat, Ujian Lenturan dan Ujian Mekanik Dinamik	38
2.4.1 Penyediaan ujian regangan padat	39
2.4.2 Penyediaan ujian lenturan	41
2.4.3 Penyediaan ujian mekanik dinamik	43
2.5 Ujian penyerapan kelembapan	44

Bab 3: Pencirian Mikrostruktur dan Kinetiks Penyerapan Kelembapan	45
3.1 Pencirian sampel	45
3.2 Taburan panjang gentian.	45
3.3 Darjah Kehabluran	47
3.4 Penyerapan Kelembapan	49
3.4.1 Kinetiks Penyerapan Kelembapan	52
3.5 Keputusan dan Perbincangan	56
3.5.1 Panjang gentian dan pecahan isipadu gentian	56
3.5.2 Morfologi kulit-teras	59
3.5.3 Darjah kehabluran	63
3.5.4 Kinetiks penyerapan kelembapan	70
3.5.4.1 Kesan suhu rendaman untuk PA6 dan PA6-GKP	70
3.5.4.2 Kesan penambahan gentian	72
3.5.4.3 Kesan orientasi gentian ke atas D	76
 Bab 4: Sifat Mekanik	 82
4.1 Pendahuluan	82
4.2 Teori penguatan gentian tidak selanjat	82
4.3 Sifat lenturan	86
4.4 Sifat mekanik dinamik	90
4.5 Keputusan dan perbincangan	98
4.5.1 Sifat lenturan	97
4.5.1.1 Kesan penambahan gentian	97
4.5.1.2 Kesan penuaan higroterma dan pengeringan semula	101

4.5.1.3 Kesan lapisan kulit teras	111
4.5.2 Sifat Mekanik Dinamik	117
4.5.2.1 Kesan penambahan gentian	119
Bab 5: Sifat keliatan.	124
5.1 Pengenalan	124
5.2 Keliatan bahan	125
5.3 Mekanik Rekahan	127
5.3.1 Mekanik Rekahan Kenyal Linear (MRKL)	129
5.4 Keputusan dan Perbincangan	136
5.4.1 Kesan penambahan gentian	136
5.4.2 Kesan lapisan kulit teras	138
5.4.3 Kesan penuaan higroterma.	143
5.4.3.1 Kesan suhu rendaman	149
Bab: 6 Kesimpulan dan cadangan kerja lanjutan	157
6.1 Kesimpulan	157
6.2 Cadangan untuk kerja lanjutan	160
Rujukan	161
LAMPIRAN-LAMPIRAN	171
Lampiran I	171
Lampiran II	172
Lampiran III	173
Lampiran IV	174

Senarai Jadual

- Jadual 1.1: Contoh-contoh bahan komposit (Bolton, 1996).
- Jadual 1.2: Klasifikasi utama bahan plastik
- Jadual 1.3: Perbezaan sifat termoplastik berhablur dan amorfus
- Jadual 2.1: Sifat fizikal poliamida 6 (Toray, 1997)
- Jadual 2.2: Sifat-sifat MaxiChop 3790 (PPG Tech data, 1997)
- Jadual 2.3: Ekstrudat diperkuat gentian kaca.
- Jadual 2.4: Keadaan pemprosesan yang digunakan pada Dwi-Skru Haake.
- Jadual 2.5: Parameter pemprosesan penting yang digunakan pada mesin pengacuan suntikan Battenfeld BA350/175 CD
- Jadual 3.1: Nilai purata panjang gentian, l_n , untuk komposit-komposit GKP-PA6 yang berlainan.
- Jadual 3.2: Ketebalan kulit-teras komposit PA6-GKP (T = zon teras; B = zon ketebalan keseluruhan; K= zon kulit).
- Jadual 3.3 : Keputusan DSC untuk PA 6 dan PA6-GKP ($V_f = 0.23$) keadaan asal (KA), yang menjalani proses penuaan (PH) dan yang dikering semula selepas penuaan (PH).
- Jadual 3.4: Kesan suhu keadaan ke atas kadar resapan, D , dan kandungan keseimbangan kelembapan, M_m untuk PA6 ($V_f = 0.0$) dan PA6-GKP ($V_f = 0.23$).
- Jadual 3.5: Kesan pecahan isipadu gentian ke atas kadar resapan, D , dan kandungan kelembapan keseimbangan M_m pada 60°C.
- Jadual 3.6: Kandungan rongga PA6 dan komposit PA6-GKP pada keadaan asal.
- Jadual 3.7: Kesan lapisan gentian ke atas D dan M_m pada perendaman 90°C.
- Jadual 4.1: Kepentingan nisbah panjang spesimen dalam ujian lenturan.

- Jadual 4.2: Darjah keronggaan komposit pada keadaan asal dengan perubahan kandungan isipadu gentian.
- Jadual 4.3: Perubahan modulus lenturan dengan peningkatan suhu higroterma untuk PA6.
- Jadual 4.4 : Perubahan modulus lenturan dengan penuaan higroterma dengan penambahan pecahan isipadu kaca pada suhu rendaman 90°C.
- Jadual 4.5: Kesan pecahan isipadu gentian, V_f ke atas perubahan di dalam modulus storan ricihan di dalam kawasan peralihan.
- Jadual 5.1: Nilai purata K_c untuk PA6 dan PA6-GKP pada keadaan asal.
- Jadual 5.2: Kesan penuaan higroterma ke atas kelakuan rekahan PA6 dan komposit PA6-GKP.

Senarai Rajah

- Rajah 1.1: Nisbah luas permukaan terhadap isipadu A/V untuk suatu partikel selinder untuk suatu isipadu tertentu diplot melawan nisbah aspek partikel $a=l/d$ (Gibson, 1994).
- Rajah 1.2: Skema mekanisme pengkupelan (Schwartz, 1992)
- Rajah 1.3: Perubahan kekakuan dengan suhu untuk suatu polimer tipikal menunjukkan suhu peralihan kaca T_g dan kesan kelembapan yang diserap ke atas T_g . $T_{go} = T_g$ kering dan $T_{gw} = T_g$ basah (Gibson, 1994).
- Rajah 1.4: Skematik proses pengisian acuan menunjukkan deformasi elemen bendalir yang pada mulanya segiempat sama pada kedudukan-kedudukan berikutan dengan kemaraan hadapan aliran (Folkes, 1982).
- Rajah 2.1: Gambar imej untuk pengukuran panjang gentian kaca
- Rajah 2.2: Spesimen regangan padat dan orientasi LT serta TL terhadap APA.
- Rajah 2.3: Spesimen Lenturan dan orientasi LT dan TL terhadap APA.
- Rajah 2.4: Kedudukan spesimen yang dipotong atas plak di tandakan sebagai (a) LT dan (b) TL. Anak panah menunjukkan arah kemasukan aliran leburan polimer.
- Rajah 2.5: Penentuan $P_{5\%}$ dan C
- Rajah 2.6: Ujian lenturan 3 titik pembengkokan
- Rajah 3.1: Histogram panjang gentian daripada pengacuanan penyuntikan termoset menunjukkan perhubungan di antara l_N dan l_W (Hull, 1996).
- Rajah 3.2: Pembentukan mungkin pengikatan antara molekul air dengan PA.
A: PA sahaja, B: PA dengan air, a dan b : pengikatan molekul air dengan PA, c: molekul air dengan air (Song *et al.*, 1990)
- Rajah 3.3: Taburan panjang gentian kaca untuk komposit nilon 6.

- Rajah 3.4 : Pengaruh penambahan gentian ke atas panjang gentian purata nombor untuk PA6-GKP.
- Rajah 3.5: Perhubungan di antara peratus isipadu gentian dengan peratus berat gentian di dalam komposit PA6-GKP.
- Rajah 3.6: Pengukuran ketebalan lapisan kulit dan teras menerusi imej penganalisa.
- Rajah 3.7: Model orientasi aliran di dalam plat nilon. 1: Lapisan nipis tanpa gentian kaca. 2: Lapisan nipis terorientasi tinggi oleh aliran. 3: Lapisan nipis tak terorientasi. 4: Lapisan tebal terorientasi oleh aliran. 5: Lapisan nipis tak terorientasi. 6. Lapisan tebal bertegak lurus kepada arah aliran dan berselari kepada permukaan (Kaliske, 1973) .
- Rajah 3.8: Termogram DSC yang menunjukkan lengkung PA6 untuk keadaan asal (KA), keadaan penuaan higroterma 90°C (90PH) dan keadaan setelah dikering semula selepas penuaan higroterma 90°C (90KS).
- Rajah 3.9: Termogram DSC yang menunjukkan lengkung komposit PA6-GKP ($V_f = 0.23$) isipadu untuk keadaan asal (KA), keadaan penuaan higroterma 90°C (90PH) dan keadaan setelah dikering semula selepas penuaan higroterma 90°C (90KS).
- Rajah 3.10: Termogram DSC yang menunjukkan lengkung komposit PA6 dan PA6-GKP ($V_f = 0.23$) untuk keadaan setelah dikering semula selepas penuaan higroterma 90°C (90KS).
- Rajah 3.11: Termogram DSC yang menunjukkan lengkung komposit PA6 dan PA6-GKP ($V_f = 0.23$) untuk keadaan penuaan higroterma 90°C berbanding keadaan setelah dikering semula selepas penuaan higroterma 90°C (90KS).

- Rajah 3.14 : Kesan suhu ke atas penyerapan air untuk PA6 dan PA6-GKP ($V_f = 0.23$).
- Rajah 3.15: Plot $\ln D$ melawan $1/T$ untuk PA6 dan PA6-GKP.
- Rajah 3.16: Kesan penambahan gentian GKP ke atas penyerapan air pada 90°C dengan arah LT.
- Rajah 3.17: Kesan penambahan gentian GKP ke atas penyerapan air pada 90°C dengan arah TL.
- Rajah 4.1 : (a) Perwakilan rajah deformasi di sekitar gentian terbenam di dalam matrik yang berada dibawah pengaruh bebanan regangan selari dengan gentian. (b) Variasi disepanjang gentian tegasan regangan di dalam gentian dan tegasan ricihan pada antaramuka. Matrik serta gentian kekal kenyal dan ikatan antaramuka adalah sempurna. l_c adalah nilai kritikal panjang gentian untuk tegasan maksima (Hull, 1996).
- Rajah 4.2: Gentian menghalang perkembangan rekahan (Ezrin, 1996)
- Rajah 4.3: Gambaran tegasan spesimen yang di bengkokkan (Clegg & Collyer, 1986).
- Rajah 4.4: Kebergantungan tegasan ricihan, σ , dan terikan ricihan, γ , semasa ujian dinamik frekuensi rendah.
- Rajah 4.5: Plot kekuatan lenturan melawan pecahan isipadu gentian, V_f , untuk spesimen dalam keadaan asal (KA).
- Rajah 4.6: Plot modulus lenturan melawan pecahan isipadu gentian, V_f , untuk spesimen dalam keadaan asal (KA).
- Rajah 4.7: Kekuatan lenturan PA6 dan komposit PA6-GKP sebagai fungsi pecahan isipadu gentian untuk spesimen dalam keadaan asal (KA) dan setelah penuaan higroterma (PH).

- Rajah 4.8: Modulus lenturan PA6 dan komposit PA6-GKP sebagai fungsi pecahan isipadu gentian untuk spesimen dalam keadaan asal (KA) dan setelah penuaan higroterma (PH).
- Rajah 4.9: SEM yang menunjukkan kesan pemplastikan matrik oleh air.
- Rajah 4.10: Kekuatan lenturan PA6 dan komposit PA6-GKP sebagai fungsi pecahan isipadu gentian untuk spesimen dalam keadaan asal (KA) dan setelah kering semula (KS).
- Rajah 4.11: Modulus lenturan PA6 dan komposit PA6-GKP sebagai fungsi pecahan isipadu gentian untuk spesimen dalam keadaan asal (KA) dan setelah kering semula (KS).
- Rajah 4.12: Darjah keronggaan untuk PA6 dan PA6-GKP setelah menjalani proses penuaan higroterma dan dikering semula.
- Rajah 4.13: Kekuatan lenturan PA6 dan komposit PA6-GKP sebagai fungsi pecahan isipadu gentian untuk spesimen dalam arah pengisian acuan LT dan TL (spesimen keadaan asal).
- Rajah 4.14: Modulus lenturan PA6 dan komposit PA6-GKP sebagai fungsi pecahan isipadu gentian untuk spesimen dalam arah pengisian acuan LT dan TL (spesimen keadaan asal).
- Rajah 4.15: Plot nisbah modulus lenturan E_{LT} terhadap E_{TL} melawan kandungan gentian.
- Rajah 4.16: Plot nisbah kekuatan lenturan LT terhadap TL melawan kandungan gentian.
- Rajah 4.17: Orientasi gentian dalam spesimen lenturan (a) LT dan (b) TL yang dikenakan tegasan lenturan (K=lapisan kulit dan T=lapisan teras).

- Rajah 4.18: SEM menunjukkan morfologi kulit-teras-kulit orientasi gentian pada keratan rentas spesimen. Arah pengisian acuan menghala keluar dari permukaan mukasurat. Gentian kaca kelihatan tertiarap dalam lapisan teras manakala pada bahagian kulit, ia menghala keluar.
- Rajah 4.19: Kesan penambahan gentian ke atas modulus storan ricihan, E' sebagai fungsi suhu untuk PA6 dan komposisinya.
- Rajah 4.20: Kebergantungan modulus relatif, E'/E'_m ke atas suhu untuk komposit PA6.
- Rajah 4.21: Perubahan tangen terlepas dengan suhu untuk PA6 dan PA6-GKP ($V_f = 0.23$). Puncak $\tan \delta$ pada 50°C adalah nilai T_g PA6.
- Rajah 4.22: Plot nilai eksperimen dengan nilai teori untuk $\tan \delta_c$ melawan pecahan isipadu gentian pada T_g .
- Rajah 5.1 : Skematik lintasan rekahan menerusi zon rosak (Friedrich, 1984).
- Rajah 5.2: Perbandingan pendekatan mekanik rekahan dengan pendekatan
- Rajah 5.3: Rekahan Griffith : Rekahan menembusi ketebalan dalam plat tegasan unipaksi dengan kelebaran infinit.
- Rajah 5.4: Kesan penambahan gentian kaca pendek dan orientasi gentian ke atas keliatan rekahan PA6 dan PA6-GKP.
- Rajah 5.5: Keadaan spesimen CT PA6-GKP ($V_f = 0.23$) untuk arah rekahan LT (a) dan TL (b) setelah ujian regangan padat pada pembesaran 50X dengan teknik SEM.
- Rajah 5.6: Perbandingan spesimen LT (kiri) dengan spesimen TL (kanan). Spesimen LT dengan GKP ($V_f = 0.11$) mula menunjukkan permulaan rekahan berliku-liku yang ketara.

- Rajah 5.7: Lengkung pembebanan-sesaran tipikal untuk (a) PA6 dan (b) PA6-GKP ($V_f = 0.23$) yang diuji pada suhu bilik 25°C dalam keadaan KA, PH dan KS masing-masing.
- Rajah 5.8: Keadaan spesimen-spesimen CT untuk PA6 di dalam keadaan (a) KA, (b) PH dan (c) KS masing-masing.
- Rajah 5.9: Kesan penuaan higroterma dalam keadaan basah ke atas keliatan rekahan PA dan PA-GKP pada suhu (dalam °C) yang berbeza.
- Rajah 5.10: Kesan penuaan higroterma dalam keadaan pengeringan semula ke atas keliatan rekahan PA6 dan PA6-GKP pada suhu (dalam °C) yang berbeza.
- Rajah 5.11: Kesan suhu penuaan higroterma dalam keadaan basah.
- Rajah 5.12: Kesan suhu penuaan higroterma dalam keadaan kering semula.
- Rajah 5.13: Komposit PA6-GKP ($V_f = 0.23$) dalam keadaan (a) KA (b) PH dan (c) KS.
- Rajah 5.14: Komposit PA6-GKP ($V_f = 0.23$) dalam keadaan (a) KA dan (b) PH dilihat dengan pembesaran yang kurang.

Senarai singkatan

APA	arah pengisian acuan
CT	regangan padat
D	koefisien peresapan
DMA	analisis mekanik dinamik
DSC	kalorimetri pengimbas kebezaan
E	modulus
E'	modulus terlesap
E''	modulus storan
E_a	tenaga pengaktifan
GKP	gentian kaca pendek
GCP	gentian karbon pendek
H_f	haba pelakuran
K	lapisan kulit
K_I	faktor keamatan tegasan
K_c	keliatan rekahan
KA	keadaan asal
KS	keadaan dikering semula setelah penuaan higroterma
l_n	panjang gentian purata nombor
l_c	panjang gentian kritikal
MRKL	mekanik rekahan kenyal linear
M_m	berat air diserap pada takat keseimbangan atau tepu
M_t	berat air diserap dalam masa t
PA	Poliamida
PA6	Poliamida 6

PA6-GKP	Poliamida 6 diperkuat gentian kaca pendek
PA6.6-GKP	Poliamida 6.6 diperkuat gentian kaca pendek
PAR	Poliarilamida
PBT	Poli(butilena tereftalat)
PP-GKP	Polipropilena diperkuat gentian kaca pendek
PEEK-GCP	Polietereterketon diperkuat gentian karbon pendek
PET-GKP	Polietilena tereftalat diperkuat gentian kaca pendek
PH	keadaan basah setelah penuaan higroterma
SEM	mikroskop elektron pengimbas
SENB	spesimen takuk tepi tunggal
T	lapisan teras
T_g	suhu peralihan kaca
T_c	suhu kehabluran
$\tan \sigma$	faktor lematian
TPDGP	termoplastik diperkuat gentian pendek
V_f	pecahan isipadu gentian

ABSTRAK

Sifat mekanik poliamida 6 diperkuat gentian kaca telah dikaji sebagai fungsi suhu dan kelembapan. Ujian lenturan, regangan padat dan mekanik dinamik telah digunakan untuk pencirian sifat komposit pada kandungan isipadu gentian berbeza.

Kajian penuaan higroterma dijalankan dengan menggunakan kinetik penyerapan kelembapan. Peresapan air ke dalam komposit telah dikaji pada kelembapan 100% menerusi perendaman spesimen ke dalam air pada suhu-suhu 27°C, 60°C dan 90°C. Model fasa tunggal bebas peresapan dengan anggapan peresapan adalah Fickian dan juga hukum peresapan Fick kedua telah digunakan. Nilai eksperimen didapati bersetuju dengan nilai teori. Kandungan kelembapan maksima dan koefisien peresapan ketara untuk komposit dengan kandungan gentian berbeza telah diselidiki. Peningkatan suhu perendaman telah didapati meningkatkan nilai koefisien peresapan ketara manakala kandungan kelembapan maksima tidak berubah dengan ketara. Proses penuaan higroterma didapati adalah suatu proses fizikal dan berbalik.

Kelakuan lenturan menunjukkan peningkatan apabila kandungan gentian kaca pendek bertambah. Kehadiran gentian juga telah mengurangkan kesan suhu dan penuaan higroterma. Keratan rentas spesimen telah diperhatikan dengan mikroskopi cahaya sebagai terdiri daripada 3 lapisan iaitu satu lapisan teras ditengah dengan dua lapisan kulit bersebelahannya. Pengaruh kehadiran fenomena teras kulit ke atas sifat lenturan telah dikaji.

Sifat mekanik dinamik komposit telah dikaji. Kesan gentian kaca terhadap modulus storan ricihan dan kedudukan suhu serta keamatan puncak peralihan telah dikaji. Penambahan gentian kaca telah meningkatkan ketegaran struktur matrik tetapi pada suhu melebihi T_g pelematan didapati meningkat.

Sifat keliatan komposit telah dikaji dan teori mekanik rekahan kenyal linear telah digunakan untuk menganalisis data keliatan. Parameter keliatan rekahan, K_c , telah ditentukan dengan menggunakan spesimen regangan padat. Peningkatan kandungan gentian meninggikan parameter keliatan tersebut. Kesan penuaan higroterma ke atas sifat keliatan turut dikaji. Pemeriksaan permukaan rekahan dengan menggunakan mikroskopi pengimbas elektron telah menunjukkan bahawa proses pembebasan tenaga utama yang bertanggungjawab ke atas keliatan komposit adalah mekanisme penarikan keluar gentian.

Hygrothermal and Fracture Properties of Short Glass Fibre Reinforced Polyamide 6 Composite

ABSTRACT

The mechanical properties of short fibre reinforced polyamide 6 was investigated as a function of temperature and humidity. Flexural strength, regangan padat and dynamic tests were used to characterise the composites properties at various fibre loadings.

Hygrothermal studies were carried out using moisture absorption kinetics. The absorption of water into the composites was carried out at 100% humidity, i.e, by immersing the specimens in water at temperatures of 27°C, 60°C and 90°C.

The single free phase diffusion model which assumed Fickian diffusion and utilised Fick's second law of diffusion was used. Good agreement was found between experimental and theoretical values. The increase of immersion temperature was found to have increased the values of the apparent diffusion coefficients. However the maximum moisture content only changed slightly. The hygrothermal aging process was found to be a physical process and reversible.

The flexural modulus and strength behaviours increases with the incorporation of short glass fibres. The addition of the fibres reduced the effects of temperatures and hygrothermal aging. Observations by light microscopy showed the presence of skin core layering, i.e, one central core sandwiched with two layers of skin on its adjacents. The effects of skin-core phenomenon was investigated.

Dynamic mechanical properties was also investigated. The effects of glass fibres on shear storage modulus and its temperature location and magnitude of the transitional

peaks was investigated. It was found that damping characteristics above the glass transition temperature increases at higher loadings of glass fibres apart from a higher matrix structural integrity.

Fracture properties of the composites was investigated using linear elastic fracture mechanic theory. The fracture toughness properties, K_{Ic} , was determined with regangan padat specimens. The increase of fibre concentrations increases the toughness parameter. The effect of hygrothermal aging on the fracture behaviour of PA6 and its composites was also studied. The fractured surfaces examined using the scanning electron microscope showed that the main energy release mechanism responsible for the composites toughness is fibre pull-out.

Bab 1. Pengenalan kepada Bahan Komposit

1.1 Pengenalan

Dunia sekarang pesat berubah dengan bertambahnya penemuan-penemuan sains dan teknologi yang kian canggih. Begitu juga dengan bahan-bahan binaan untuk industri automotif, elektrik, elektronik, aplikasi konsumer dan industri pembungkusan. Oleh kerana kos serta prestasi kekal sebagai agenda utama sebarang jenis perniagaan, penemuan bahan plastik pada awal abad ini telah merupakan suatu kurniaan pada manusia sejagat.

Semenjak penemuannya, bahan plastik telah melalui proses pembaharuan dan pengubahsuaian terhadap sifat-sifatnya untuk memenuhi keperluan masa kini. Ini termasuklah keringanan, kekuatan, mudah direkabentuk, kestabilan dimensi, rintangan hakisan, prestasi dielektrik serta kos yang rendah samada dalam penggunaan mahupun penghasilannya.

Pada suatu ketika dahulu, bahan plastik ditemui hanya pada aplikasi automotif prestasi rendah seperti penakung air. Kini bahan termaju polimer dan komposit giat menggantikan logam dalam aplikasi yang dulunya difikirkan mustahil seperti tudung injap dan komponen-komponen pacuan kenderaan. Hotter (1998) menyatakan fungsi resin kejuruteraan semakin berkembang disebabkan adunan-adunan yang memenuhi prestasi tertentu seperti rintangan pada suhu-suhu tinggi, krip dan bebanan hentaman termasuk bahan-bahan kimia hakis dan bendalir-bendalir dalam kenderaan.

1.1.1 Definisi

Agarwal & Broutman (1980) mendefinisikan komposit sebagai bahan yang mengandungi dua ataupun lebih bahan-bahan, berkonstitusi secara kimia yang berlainan pada tahap skala makro dengan suatu fasa perantara yang membahagikan mereka.

Komposit-komposit mengandung satu atau lebih fasa tidak selanjat terbenam di dalam fasa selanjat. Fasa tidak selanjat selalunya adalah lebih keras dan kuat dan dipanggil bahan penguatan manakala fasa selanjat dipanggil matrik.

Gibson (1994) pula mendefinisikannya sebagai bahan-bahan, yang terdiri daripada dua atau pun lebih bahan berasingan bergabung di dalam struktur unit makroskopik, yang diperbuat daripada berbagai bagai kombinasi logam, polimer dan seramik dengan syarat unit berstruktur tersebut dibentuk pada tahap mikroskopik dan bukannya makroskopik.

Secara ringkasnya, Rosato *et al.* (1991) menyatakan selagi bahan berkenaan adalah bahan plastik maka bahan komposit plastik adalah plastik yang diperkuatkan samada dengan bahan gentian mahupun bahan bukan gentian.

1.1.2 Klasifikasi

Bahan komposit pada amnya dikelaskan kepada tiga kategori utama bergantung pada mikrostruktur fasa tidak selanjatnya iaitu bahan diperkuat gentian, bahan diperkuat partikel dan bahan diperkuat dispersi (Bolton, 1996). Contohnya diberikan pada Jadual 1.1.

Gentian di dalam komposit diperkuat gentian berfungsi sebagai pemikul bebanan yang dikenakan terhadap bahan komposit dan juga menyumbang kepada kekakuannya. Justeru itu, gentian-gentian mempunyai sifat-sifat kekuatan regangan serta modulus yang tinggi. Saiz gentian berbeza daripada selanjat yang meliputi keseluruhan panjang komposit hinggalah kepada tidak selanjat yang mana saiznya adalah pendek. Orientasi gentian juga berbeza-beza daripada searah kepada rawak bergantung kepada keperluan komposit.

Jadual 1.1: Contoh-contoh bahan komposit (Bolton ,1996).

Diperkuat gentian	Diperkuat partikel	Diperkuat dispersi
Tayar kenderaan , Konkrit diperkuat, Plastiks diperkuat gentian kaca, Gentian karbon dalam resin epoksi atau aluminium, Kayu (tiub-tiub selulosa di dalam matrik lignin)	Bahan polimerik yang mengandungi pengisi seperti sfera kaca atau serbuk-serbuk halus . Polimer liat di mana partikel-partikel halus getah di masukkan. “Cermets” dengan partikel seramik di dalam matrik logam	Aloi aluminium yang terhasil selepas pengolahan larutan dan pengerasan pemendakan. Keluli maraj. Logam bersinter contohnya 10% aluminium oksida menerusi matrik aluminium.

Partikel di dalam komposit diperkuat partikel mempunyai saiz berdiameter 1µm atau lebih. Fungsi utama pencampuran pengisi partikel adalah pengurangan kos bahan kerana lazimnya kos pengisi adalah lebih murah daripada bahan polimer. Partikel sfera halus karbon berupaya meningkatkan modulus dan kekuatan regangan; partikel bergetah halus meningkatkan rintangan hentaman, mengurangkan krip dan pengembangan terma. Di samping itu, Shanks (1986) mendapati bahawa jenis-jenis pengisi serta kuantiti yang dicampurkan dapat mengurangkan kadar penuaan terma polimer.

1.2 Plastik diperkuat gentian.

Penguatan meningkatkan sifat-sifat fizikal, mekanik dan terma. Plastik diperkuat gentian direka untuk mengambil kesempatan terhadap sifat-sifat tegar dan kuat gentian dan plastik digunakan kerana ia adalah pengikat yang sesuai dan senang diacukan (Kelly, 1973) .

Lima faktor yang mengawal prestasi sifat mekanik termoplastik diperkuat gentian pendek adalah:

- pelekatan penguatan pada resin matrik.

- ii. kandungan gentian
- iii. orientasi gentian
- iv. nisbah panjang terhadap diameter gentian, atau lebih dikenali sebagai nisbah aspek di dalam komponen akhir hasilan teracu.
- v. kehadiran rongga dan kecacatan.

1.2.1 Matrik

Askeland (1986) dan Jastrzebski (1987) menyimpulkan peranan yang dimainkan oleh matrik adalah seperti berikut:

- i. menambat dan memegang gentian-gentian bersama dan melindungi mereka daripada kerosakan mekanik dan kimia yang boleh berlaku melalui geseran permukaan mereka ataupun serangan kimia oleh bahan luar.
- ii. bertindak sebagai media yang memindah dan mengagihkan bebanan kepada gentian-gentian. Pengikatan di antara gentian dan matrik haruslah cukup kuat untuk mengatasi pengasingan antara muka atau penarikan keluar gentian oleh bebanan luaran. Tindakbalas kimia tidak seharusnya wujud kerana ia boleh melemahkan gentian. Hal ini seterusnya melemahkan ikatan gentian dengan matrik.
- iii. mengasingkan gentian-gentian dan menghalang rekahan rapuh yang merambat menerusi sesuatu bahagian komposit. Kekuatan plastik diperkuat gentian adalah ditentukan oleh kekuatan gentian dan keadaan pengikatan di antara gentian dengan matrik.
- iv. mengawal sifat-sifat elektrik, sifat kimia dan penggunaan komposit suhu tinggi.

Dua kelas utama plastik yang digunakan sebagai matrik adalah resin termoplastik dan termoset. Contoh-contoh bahan termoplastik dan termoset ditunjukkan pada Jadual 1.2 (Berins, 1991).

Jadual 1.2: Klasifikasi utama bahan plastik (Berins, 1991)

Termoplastik		Termoset
Berhablur	Amorfus	
Asetal (POM), Poliester(PET,PBT), Poliamida(nilon)(PA), Fluorokarbon(PTFE), Polietilena(PE), Polipropilena (PP)	Akilonitril-Butadiena- Stirena(ABS), Akrilik(PMMA), Polikarbonat(PC) Polifenilena Oksida (PPO), Polistirena(PS), Polivinilklorida (PVC)	Alkid, Epoksi, Melamin Dialil Ftalat, Fenolik, Poliester, Silikon, Urea, Uretana, Vinilester.

a) Polimer Termoset

Termoset lazim yang digunakan untuk komposit termasuklah epoksi dan poliester, Ezrin (1996).

Kebaikan menggunakan resin-resin termoset adalah berat molekulnya yang rendah pada awalnya memberikan kelikatan rendah. Hal ini membolehkan pembasahan gentian yang lebih berkesan berbanding kelikatan tinggi leburan termoplastik berberat molekul tinggi. Darjah sambung-silang yang boleh dikawal mempengaruhi sifat keliatannya dan rintangan terhadap rekahan.

b) Polimer Termoplastik

Resin termoplastik terdiri daripada molekul-molekul panjang, setiapnya mempunyai rantai tepi atau kumpulan yang tidak tertambat pada molekul lain, iaitu tidak di sambungsilangkan. Justeru itu , mereka dapat dilebur atau dipejalkan berkali-

kali melalui proses pemanasan dan penyejukan untuk diguna semula. Perubahan kimia jarang berlaku semasa proses pembentukan. Keburukan ketara adalah aplikasinya terhad pada suhu tertentu sebelum ia mengalami pelembutan.

Kebaikan menggunakan termoplastik pula adalah kekuatan dan keliatan yang lebih baik pada lazimnya. Resin-resin termoplastik terbahagi kepada dua jenis iaitu jenis berhablur dan jenis amorfus yang memberikan sifat-sifat fizikal serta kimia yang berbeza. Sifat khas plastik berhablur mempunyai darjah kehabluran yang boleh dipengaruhi dan dikawal oleh kitaran pengacuanan.

Sungguhpun terdapat klasifikasi seperti yang tersebut di atas, perbezaan di antaranya kadangkala tidak ketara. Contohnya pada masa kini bahan termoplastik polietilena yang menyaluti dawai boleh disambungsilangkan melalui radiasi atau secara kimia kemudiannya untuk membentuk bahan termoset yang tidak akan melebur bila dipanaskan, Berins (1991).

Polimer berhablur mempunyai rantai tulang belakangnya mudah dilentur dan membolehkannya untuk berlipat dan tersusun dalam struktur padat tersusun. Contohnya polietilena dan poliamida. Polimer amorfus pula mempunyai rantai tulang belakang yang tegar disebabkan oleh kehadiran kumpulan-kumpulan penden, rantai tepi atau pun kumpulan tegar pada rantai utamanya. Hal ini menyebabkan penyusunan padat terhalang dan seterusnya susunan secara rawak terhasil. Contohnya polikarbonat dan polistirena. Jadual 1.3 menunjukkan perbezaan sifat-sifat termoplastik berhablur dengan amorfus (Berins, 1991).

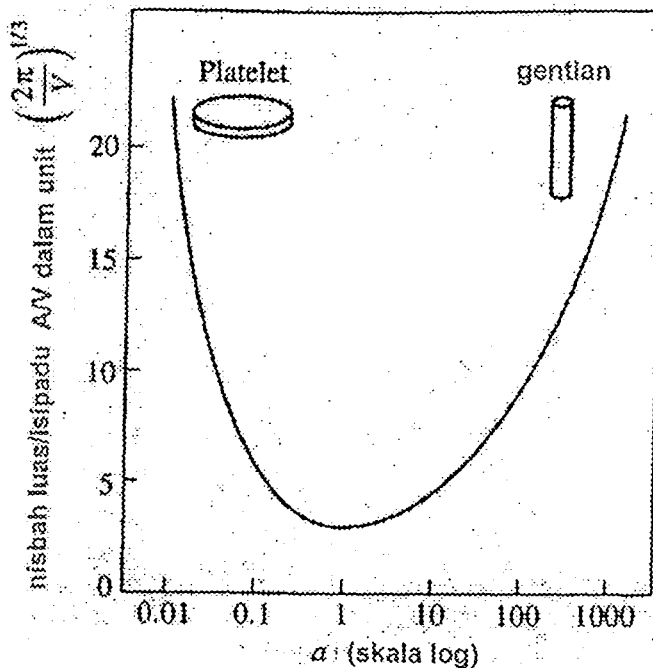
Jadual 1.3. Perbezaan sifat termoplastik berhablur dan amorfus (Berins, 1991)

Berhablur	Amorfus
Takat lebur yang tajam	Julat suhu pelembutan yang lebar
Pengecutan tinggi	Pengecutan rendah
Rintangan pelarut yang baik	Sensitif terhadap pelarut
Rintangan kelesuan yang baik	Rintangan kelesuan yang rendah

1.2.2 Fasa Penguatan

Kebaikan gentian adalah konfigurasi geometriknya memberikan interaksi berkesan dengan matrik. Dari rajah 1.1, nisbah luas permukaan terhadap isipadu adalah paling tinggi untuk jasad silinder apabila ianya berbentuk plat ataupun gentian. Oleh itu, kawasan antaramuka gentian/matrik untuk pemindahan tegasan per unit isipadu gentian turut meningkat apabila nisbah panjang gentian terhadap diameternya bertambah (Gibson, 1994). Nisbah aspek gentian adalah parameter utama yang mengawal dispersi gentian, pelekatan gentian-matrik dan prestasi komposit polimer diperkuat gentian pendek. Jika nisbah aspek adalah lebih rendah daripada nisbah aspek kritikal, pemindahan tegasan menjadi tidak berkesan. Di samping itu, Hu dan Weng (1998) dalam penganalisan mikromekanik telah mendapati jasad berbentuk silinder atau lonjong akan memberikan lengkung pengerasan mampatan yang lebih tinggi dengan kehadiran tegasan baki terma. Bentuk buntal atau plet akan memberikan keadaan yang sebaliknya.

Gentian-gentian kaca pendek digunakan di dalam aplikasi pengacuanan suntikan manakala gentian-gentian panjang selanjat digunakan di dalam proses pultrusi, pelilitan filamen dan proses-proses tangan ataupun semburan "layup". Satu contoh komposit gentian selanjat panjang adalah rod-rod pengail ikan. Gentian-gentian kaca, kevlar, karbon atau gentian grafit, boron dan juga yang lain juga digunakan (Ezrin, 1996).



Rajah 1.1: Nisbah luas permukaan terhadap isipadu A/V untuk suatu partikel silinder untuk suatu isipadu tertentu diplot melawan nisbah aspek partikel $a=l/d$ (Gibson, 1994).

Keburukan menggunakan gentian adalah ketidakupayaannya untuk menanggung pembebanan pemampatan secara membujur dan sifat-sifat mekanik melintangnya pada amnya tidaklah sebgus sifat-sifat membujur yang berkenaan. Oleh itu, gentian pada amnya tidaklah berguna sebagai bahan berstruktur melainkan jika mereka dipegang bersama oleh pengikat atau bahan matrik dan pengukuhan pada arah melintang disediakan.

Jenis penguatan yang di pilih haruslah stabil secara kimia terhadap suhu-suhu pemprosesan dan juga persekitaran aplikasi. Polimer diperkuat gentian kaca dan karbon adalah stabil sekurang-kurangnya selama 3 jam pada suhu 200°C. Sebaliknya gentian aramida menyebabkan pembebasan haba pada 200°C dan seterusnya menyebabkan degradasi matrik berikutan dari pembebasan radikal-radikal bebas oleh aramida (Hancox, 1998).

1.2.2.1 Gentian kaca.

Kandungan utama kebanyakan kaca bukan organik adalah silika. Molekul silikon dioksida mempunyai konfigurasi tetrahedral, terdiri daripada satu ion pertengahan silikon dikelilingi oleh empat ion-ion oksigen. Rangkaian tiga dimensi silika tetrahedral ini adalah asas kepada variasi serta sifat-sifat luar biasa kaca. Dengan penambahan ramuan-ramuan pengubah seperti oksida logam yang akan menjadi sebahagian daripada rangkaian silika ataupun mennyahkan rangkaian tersebut, sifat-sifat kaca amorfus boleh di bawa dan di laraskan kepada tahap-tahap prestasi yang berlainan. Gred-gred kaca yang lazim digunakan termasuklah gred E, S dan D.

Kaca E merupakan jenis kaca yang pertama dikembangkan dan yang paling murah disamping memiliki prestasi mekanik tinggi. Ia terdiri daripada kaca lime-alumina-borosilikat untuk kegunaan elektrik. Ia sangat berkesan untuk kebanyakan proses-proses dan hasilan daripada aplikasi struktur dan perhiasan. Keburukan utamanya merupakan rintangan yang lemah terhadap asid.

Kaca S adalah kaca tegasan-kekuatan tinggi. Kekuatan regangan adalah 33 % lebih tinggi dan modulus kekenyalannya adalah 20% lebih tinggi daripada kaca E. Nisbah kekuatan tinggi terhadap beratnya menjadikannya baik untuk aplikasi aeroangkasa. Ia memiliki kekuatan pengekal pada suhu tinggi yang bagus dan juga had kelesuan tinggi.

Kaca D adalah kaca dielektrik yang dimajukan untuk prestasi tinggi aplikasi elektronik. Sifat mekaniknya adalah lebih rendah daripada kaca E dan S. Walau bagaimanapun, pemalar dielektriknya yang rendah beserta dengan ketumpatan rendahnya membuatnya sesuai untuk pembinaan radom radar.

1.2.2.2 Gentian-gentian lain

Gentian-gentian lain yang lazim digunakan untuk komposit termasuklah gentian karbon, grafit, gentian-gentian polimer seperti aramida, gentian logam dan juga gentian-gentian semulajadi. Gentian karbon dan grafit memberikan sifat keliatan dan kekuatan yang baik kepada komposit polimer disamping kekonduksian elektrik serta terma yang tinggi. Oleh yang demikian ia lazimnya digunakan dalam industri automotif serta elektronik. Koefisien pengembangan yang menghampiri sifar untuk gentian karbon membuatnya sesuai untuk digunakan sebagai bahan penambah untuk penurunan pengembangan terma bahan. Gentian grafit pula memberikan kekonduksian terma yang tinggi dan sesuai untuk aplikasi yang memerlukan pelepasan haba (Chung, 1994).

Gentian polimer aramida merupakan gentian poliamida aromatik. Ia lazimnya digunakan untuk menyediakan sistem yang memerlukan keringanan dan kekakuan yang tinggi. Sistem aramida mempunyai ketahanan terhadap kelesuan, kerosakan hentaman dan pemecahan disebabkan tegasan. Ia juga adalah penebat elektrik yang baik (Modern Plastics, 1994).

Gentian logam digunakan untuk memberikan kekonduksian elektrik yang tinggi. Kegunaannya termasuklah rangka luar untuk komputer dan lain-lain barangan elektronik yang memerlukan perlindungan terhadap gangguan elektromagnet dan penyahcasan elektrostatik (De dan White, 1996).

Gentian-gentian yang tersebut di atas biasanya tidak digunakan dalam kuantiti yang banyak disebabkan oleh kosnya yang tinggi. Oleh itu, lazimnya ia dicampurkan dengan gentian lain seperti gentian kaca untuk pengurangan kos disamping memiliki sifat-sifat yang diperlukan. Pada kebelakangan ini gentian semulajadi mendapat perhatian yang lebih menggalakkan disebabkan oleh biodegradasinya yang tidak merosakkan alam persekitaran. Contoh gentian semulajadi termasuklah gentian kelapa

sawit, selulos dan jut. Oleh kerana kekuatan gentian semulajadi tidak setanding gentian buatan, aplikasi paling sesuai merupakan aplikasi yang memerlukan rintangan hentaman dan keliatan seperti pakaian perlindungan dan topi keselamatan, penyerap hentaman dan lain-lain aplikasi ketenteraan, sivil dan industri (Visconti,1992).

1.2.2.3 Antaramuka gentian-matrik

Untuk memainkan peranan penguatan, pengikatan di antara gentian dengan resin haruslah kuat untuk memastikan pemindahan tegasan yang baik dari matrik polimer kepada gentian melalui kawasan antaramuka. Jika pengkupelan gagal dibawah pengaruh tegasan maka gentian-gentian tidak lagi menguatkan resin secara berkesan.

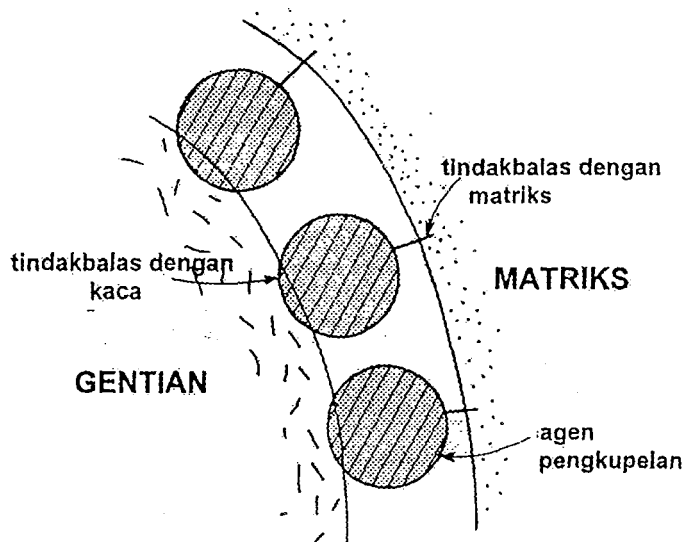
Agen pengkupelan yang diperlukan dicampurkan pada tahap kuantiti yang rendah dalam bentuk penyalutan nipis. Lapisan yang tebal berkemungkinan gagal dalam penggandingan disebabkan agen pengkupelan dengan sendirinya tidak bertujuan untuk berfungsi sebagai komponen penanggung beban (Ezrin, 1996; Vazquez *et al.*, 1998).

Pengikatan dengan agen pengkupelan adalah jenis pengikatan fizikal di antara gentian dengan resin dan juga pengikatan kimia. Kajian-kajian ke atas agen-agen pengkupelan lebih ditujukan kepada pengikatan kimia yang lebih erat untuk kedua-dua gentian dan resin. Agen pengkupelan paling bagus harus menyediakan suatu lapisan mudah lentur modulus rendah pada antaramuka yang akan meningkatkan lagi kekuatan pelekatan adhesif ikatan gentian-resin dan mengurangkan bilangan rongga di dalam bahan (Ezrin, 1996).

Molekul-molekul kompleks agen-agen mengorientasikan diri mereka dengan sebegitu cara sehingga suatu kumpulan ion-ion boleh bertindak balas dengan ion-ion silikon permukaan kaca untuk menghasilkan suatu ikatan manakala kumpulan organik

tidak tepu mengambil bahagian di dalam tindak balas semasa pempolimeran resin.

Rajah 1.2 menunjukkan skematik pengkupelan.



Rajah 1.2: Skema mekanisme pengkupelan (Schwartz, 1992)

Agen-agen pengkupelan tipikal adalah kompleks-kompleks kromium, silana dan titanat. Agen-agen pengkupelan mengandungi kumpulan-kumpulan reaktif-resin seperti epoksi, vinil, amina dan metakril. Penyelidikan ke atas sifat-sifat antaramuka gentian/matrik melibatkan kegunaan komposit gentian tunggal untuk ujian-ujian mikromekanik seperti ujian fragmentasi (Sjogren *et al.*, 1999; Pisanova dan Zhandarov, 1997; Zhandarov dan Pisanova, 1997) dan sebilangan ujian-ujian penarikan keluar gentian tunggal, penyahikatan mikro dan indentasi mikro (Pegoretti *et al.*, 1998). Walau bagaimanapun, kaedah-kaedah tersebut didapati ada kelemahan terutamanya apabila keliatan antaramukanya tinggi (Sjogren *et al.*, 1999).

1.3 Penuaan higroterma plastik diperkuat gentian

Plastik diperkuat gentian kaca mempunyai daya ketahanan yang bagus jika dibandingkan dengan logam yang boleh karat. Oleh yang demikian ia digunakan dengan meluas dalam penggunaan dalam persekitaran berair seperti tangki air, penakung air, bot dan sebagainya. Walau bagaimanapun, plastik diperkuat gentian kaca menyerap air setelah suatu jangka masa. Hal ini menambah berat komposit dan seterusnya mengurangkan sifat-sifat mekaniknya yang baik. Namun demikian, bergantung kepada aplikasi komposit, penyerapan air boleh membawa faedah. Kuantiti air diserap bergantung kepada jenis matrik, suhu, jangka masa perendaman, orientasi gentian dan juga kandungan garam dalam air (Ezrin, 1996).

Biasanya kehilangan berat pada suhu perendaman yang tinggi adalah berkaitan dengan hidrolisis atau pengasingan kumpulan-kumpulan tepi daripada rantai polimer atau nyahikatan bahan di persekitaran antaramuka gentian-matrik (Liao *et al.*, 1998).

Peresapan molekul-molekul kecil seperti air ke dalam polimer jenis separa hablur bergantung pada keseluruhannya pada saiz dan bentuk hablur ataupun kristalit serta darjah kehablurannya. Peresapan pada amnya juga dianggap berlaku pada kawasan amorfus polimer dan bahagian hablurnya tidak dapat ditembusi. Kristalit merupakan rintangan terhadap pergerakan molekul kecil menerusi polimer. Suatu pengulasan terperinci diberikan oleh Hedenqvist dan Gedde (1996).

Kawasan antaramuka adalah penting dalam merekabentuk plastik diperkuat gentian untuk meningkatkan daya rintangan terhadap penyerapan air . Morii *et al.* (1997) mendapati peningkatan berat kawasan antaramuka komposit resin vinilester terutamanya terjadi disebabkan penusukan air ke dalam kawasan nyahikatan gentian-matrik pada antaramuka. Hal ini menyarankan rintangan air pengikat pada kawasan

antaramuka adalah penting untuk meningkatkan rintangan plastik diperkuat gentian pada keseluruhannya.

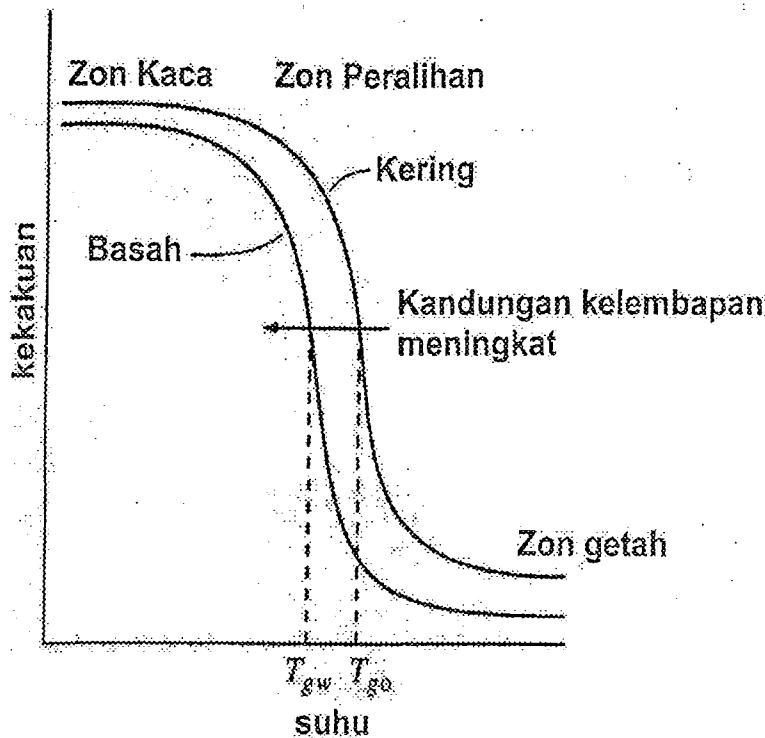
Semua jenis plastik menyerap air pada tahap tertentu tetapi ikatan-ikatan kimia yang kuat di antara kaca dan agen pengkupelan menghalang air daripada menunjukkan kesan bencana ke atas pelekatan antaramuka.

Pritchard (1981) memberikan istilah higroterma yang menyarankan pendedahan serentak kepada kelembapan relatif tinggi atau perendaman air bersama-sama dengan suhu yang ditingkatkan. Degradasi sifat-sifat mekanik adalah dipercayai berlaku sebahagiannya kerana kelembapan adalah diserap oleh resin dan dilembutkan atau diplastikkannya. Proses ini berlaku dengan mendadak pada suhu 80°C tetapi lebih perlahan pada suhu bilik. Kesan utamanya adalah penurunan suhu peralihan kaca, T_g sebanyak beberapa darjah. Ini akan mengurangkan sifat-sifat perlakuan suhu tinggi resin dan komposit kerana keadaan operasi asalnya berkemungkinan melebihi T_g resin basah. Hal ini dapat digambarkan pada rajah 1.3 (Gibson, 1994).

Penurunan yang berlaku pada suhu bilik adalah disebabkan oleh kerosakan antaramuka, rekahan mikro atau juga oleh perubahan struktur kekal di dalam resin.

Keamatan kerosakan higroterma adalah bergantung kepada:

- i. Sifat semulajadi matrik resin.
- ii. Kuantiti air yang diserap.
- iii. Masa dan suhu pendedahan.
- iv. Kerosakan ikatan antaramuka oleh air.
- v. Orientasi penguatan.



Rajah 1.3: Perubahan kekakuan dengan suhu untuk suatu polimer tipikal menunjukkan suhu peralihan kaca T_g dan kesan kelembapan yang diserap ke atas T_g . $T_{go} = T_g$ kering dan $T_{gw} = T_g$ basah (Gibson, 1994).

Kaca adalah bahan polar berafiniti kuat terhadap air. Kaca yang tidak dilindungi mempunyai suatu bilangan lapisan molekular air yang mana akan memberi kesan buruk terhadap pengikatan di antara gentian kaca dan matrik resin. Bukti-bukti kuat menyarankan gentian kaca E yang mempunyai rintangan asid yang kurang menyebabkan rekahan pada rod-rod komposit dibawah pengaruh pembebanan dan juga tangki-tangki besar (Ezrin, 1996).

1.3.1 Sifat higroterma plastik diperkuat gentian

Liao *et al.* (1998) mendapati peresapan air untuk vinilester diperkuat gentian kaca selanjut menurun dengan meningkatnya kepekatan garam natrium klorida. Di samping itu, peresapan air juga diperhatikan sebagai bergantung kepada orientasi

gentian: orientasi gentian secara bersudut tepat kepada arah membujur tiub yang terpultrusi didapati lebih tinggi daripada orientasi secara selari. Mereka juga mendapati kehilangan berat bahan berlaku pada suhu perendaman yang melebihi 75°C.

Ujian jangka pendek dengan spesimen tepu air PMMA telah menunjukkan bahawa media yang di serap menghasilkan suatu penurunan modulus E dan juga tegasan-rekahan berbanding dengan sampel yang didedahkan kepada udara. Air suling menghasilkan suatu anjakan peralihan daripada rekahan rapuh kepada rekahan mulur pada suhu tinggi. Suhu hanya mempunyai pengaruh kecil ke atas magnitud mutlak nilai terikan ini (Putz dan Menges, 1978).

Polimer-polimer jenis kondensasi boleh mengalami proses hidrolisis apabila terdedah kepada penuaan higroterma. Tindakbalas dengan air mengakibatkan pengguntingan rantai dan pengurangan berat molekul. Berat air serendah 0.02% yang diserap polimer yang kemudiannya di proses pada suhu 250°C hingga 300°C adalah mencukupi untuk menyebabkan pemerosotan berat molekul dan seterusnya kehilangan prestasi. Sungguhpun mekanisme pengguntingan rantai tidak dapat dielakkan, tetapi hasrat yang diinginkan adalah untuk menghadkan supaya berat molekul tidak dikurangkan melebihi 10% dari asalnya. Justeru itu, penggunaan kitaran semula harus dihadkan dan berat molekul patut diuji sebelum digunakan. Akaun kitaran semula yang digunakan adalah paling penting untuk polimer-polimer kondensasi. Kumpulan jenis polimer yang boleh dihidrolisis termasuklah poliamida, poliester, polikarbonat dan poliurethana. Hidrolisis semasa aplikasi jarang berlaku disebabkan suhu semasa penggunaan adalah jauh lebih rendah berbanding dengan suhu pemprosesan. Kadar hidrolisis mungkin ditingkatkan oleh kehadiran asid atau alkali. Di samping itu suhu yang tinggi mempercepatkan lagi kadar hidrolisis. Penyerapan air mempunyai kebaikan di sebalik keburukan yang ternyata di atas. Penyerapan air sebanyak dua atau empat

peratus pecahan berat membuatkan poliamida seperti nilon 6 lebih berintangan terhadap rekahan. Jika ia dikeringkan, polimer menjadi rapuh (Ezrin, 1996).

Sungguhpun persekitaran kimia boleh menyebabkan kehilangan sifat-sifat mekanik, ia jarang membawa kepada penyusutan yang serius jika bertindak bersendirian. Kombinasi faktor-faktor fizikal seperti tegasan bersama-sama dengan faktor kimialah yang membawa kepada masalah yang lebih teruk. Ini dikenali sebagai ESC (environmental stress cracking) atau tegasan rekahan persekitaran. (Andrews, 1978).

1.4 Termoplastik diperkuat gentian pendek

Pada masa kini termoplastik diperkuat gentian pendek kian mendapat sambutan yang menggalakkan berbanding komposit gentian panjang. Faktor-faktor yang membawa kepada kelaziman penggunaan termoplastik diperkuat gentian pendek adalah seperti berikut (Gibson, 1994):

- i. kesenangan pembentukkan dengan menggunakan proses ringkas seperti "layup" dan pengacuanan.
- ii. kos pengeluarannya rendah dengan kadar yang tinggi
- iii. komponen-komponen dengan bentuk geometrik kompleks boleh diacukan dengan senang berbanding komposit gentian selanjar
- iv. kesenangan dicampurkan dengan resin matrik cair untuk di acuan suntikkan ataupun dengan acuan mampatan.
- v. hasilan yang didapati mempunyai sifat-sifat mekanik isotropik pada amnya manakala komposit gentian selanjar uniarah adalah anisotropik.

Contoh-contoh polimer yang digunakan untuk penghasilan plastik diperkuat gentian kaca pendek yang terdapat dalam pasaran kini termasuklah poliamida 66,

polikarbonat, polibutilena dan sebagainya. Bahan tersebut dikeluarkan dan dipasarkan oleh BASF, DuPont, Hoechst, Bayer dan sebagainya di bawah jenama seperti Valox, Lexan, Ultramid, Celanese dan sebagainya. Contoh penggunaan termasuklah komponen kenderaan enjin seperti “manifold” pengambilan udara, tudung peralatan “power tools”, gear dan lain-lain (Woebcken, 1995).

1.4.1 Pemprosesan plastik diperkuat gentian pendek

Bagi kes termoplastik diperkuat gentian pendek, proses pembentukan yang lazimnya digunakan adalah pengacuanan suntikan disebabkan kesenangan dan kos yang rendah serta prosesnya yang cepat. Langkah penyebatian dan pembentukan untuk ini meskipun lazimnya terasing tetapi dengan teknologi kini boleh digabungkan (Morikawa, 1998).

(a) Penyebatian

Penyebatian plastik didefinisikan oleh Todd (1998) sebagai pengeluaran suatu hasilan yang boleh digunakan, suatu hasilan yang lebih seragam, di dalam suatu bentuk yang lebih berguna. Ia melibatkan langkah-langkah berikut:

- i. kemungkinan pra perlakuan seperti pengeringan matrik higroskopik untuk mengelakkan degradasi oksidatif.
- ii. penyuapan ke dalam mesin pemprosesan bergantung kepada bahan tercampur. Bahan cair memerlukan kaedah berbeza dengan bahan pejal dan pra pencampuran mungkin diperlukan.
- iii. peleburan untuk mencapai keseragaman, kesemua bahan-bahan yang dicampurkan pada tahap mikro dengan matrik
- iv. pencampuran: penyerakan dan pembahagian. Pencampuran penyerakan memecahkan agregat-agregat atau kelompok-kelompok pejal kepada saiz

kecil muktamad. Pencampuran pembahagian pula memberikan keseragaman ruangan kesemua komponen-komponen. Contohnya, untuk termoplastik diperkuat gentian pendek, kemasukan gentian pendek ke dalam matrik memerlukan suatu tahap pencampuran penyerakan untuk membahagikan kelompok gentian kepada gentian-gentian individu. Seterusnya ini diikuti oleh pencampuran penyerakan yang memberikan kedudukan setiap gentian satu dengan yang lain di dalam matrik secara seragam.

- v. kemungkinan tindakbalas di antara ramuan-ramuan tercampur.
- vi. perlohongan untuk mengeluarkan udara dan kelembapan yang berasal daripada ramuan penambah dan pengisi serbuk, saki baki monomer, agen pengikat pada gentian kaca dan sebagainya untuk menghasilkan butiran dengan ketumpatan seragam.
- vii. tekanan untuk pembentukkan hasilan. Hal ini tercapai dengan menggunakan modifikasi khas pada skru pencampur seperti pembantu pencampur untuk skru tunggal dan pengayuh pengadun supaya ramuan-ramuan pencampuran dapat mencapai darjah interaksi tinggi dengan matrik.

Pencampuran leburan lebih digunakan dalam industri ini dan boleh dibahagikan kepada pengekrudan leburan dan pencampuran dalaman. Pengekrudan leburan menggunakan jenis-jenis skru berputar yang berbeza samada jenis tunggal ataupun kembar dengan rekabentuk yang tersendiri bergantung kepada pengeluarannya. Gentian-gentian disebarkan secara ~~rawak dalam leburan~~ polimer dan juga dalam hasilan akhir. Satu keburukannya ialah pematahan gentian-gentian dalam proses ini. Panjang gentian

akhir dalam hasil granulat bergantung kepada keadaan jenis peralatan, rekabentuk dan juga parameter mesin yang dipakai. Suatu penjelasan terperinci proses-proses diberikan oleh Titow & Lanham (1975), Todd (1998) dan Baird & Collias (1995).

1.4.2 Pengacuanan suntikan

Pengacuanan suntikan merupakan proses yang paling lazim digunakan untuk membentuk hasil termoplastik. Sepertimana halnya dengan bahan termoplastik, kualiti hasil komposit diperkuat gentian yang menggunakan proses ini adalah dikawal rapi oleh parameter-parameter mesin. Panjang gentian, orientasinya, kehabluran serta proses degradasi merupakan antara perkara penting yang perlu dikawal oleh pekerja, rekabentuk acuan, mesin serta bahan permulaannya. Parameter penting mesin yang disarankan oleh Whelan, 1982 ; Bryce, 1991; dan Folkes, 1982 termasuklah

- i. halaju putaran skru dan tekanan ke belakang yang rendah untuk mengurangkan pematahan gentian yang keterlaluan
- ii halaju suntikan dan suhu leburan yang tinggi supaya kelikatan yang rendah terhasil yang mana membolehkan pengaliran yang lebih senang dan cepat sebelum get membeku dan menghalang pengisian yang sempurna
- iii kawalan pemanasan serta masa penyejukan acuan yang baik untuk darjah kehabluran paling tinggi dengan dimensi hasil yang lebih stabil.

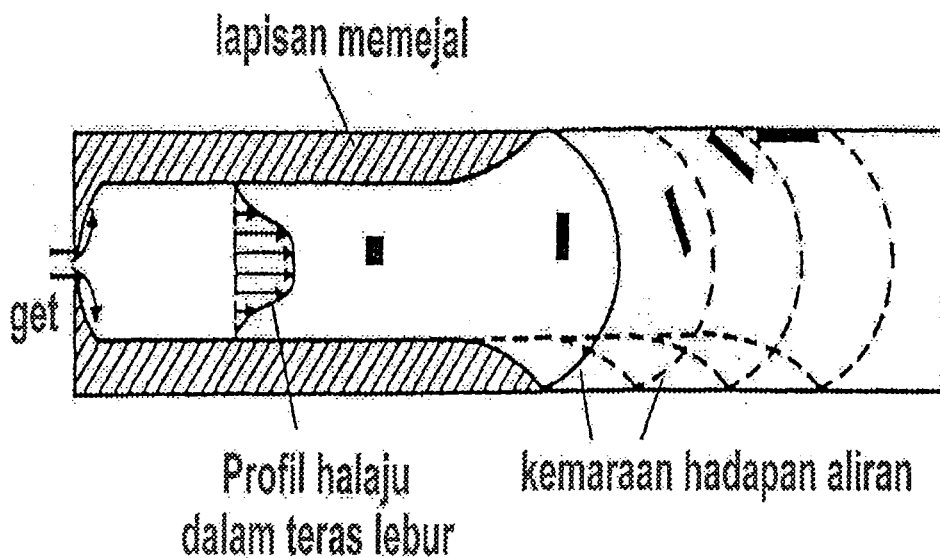
Tadmor dan Gogos (1979) menjelaskan hasil dari aliran polimer pancutan untuk aliran celah sempit, suatu lapisan polimer terorientasi berasal dari teras tengah hadapan aliran yang sedang mara dengan kadar pemanjangan tetap adalah diendapkan pada dinding sejuk acuan seperti digambarkan pada Rajah 1.4. Lapisan permukaan memejal apabila ia menyentuh dinding sejuk. Hal ini mengekalkan orientasi pemanjangan

maksima. Berhampiran dengan permukaan iaitu lapisan kulit, relaksasi molekul yang berlaku menghasilkan orientasi yang berkurangan. Taburan orientasi muktamad dalam lapisan kulit bergantung kepada kadar penyejukan dan masa relaksasi. Orientasi kulit adalah uniarah dalam arah kemaraan aliran. Keadaan orientasi bertukar kepada dwi arah apabila celah sempit bertukar kepada celah yang lebar.

Lebih jauh dari permukaan, orientasi molekul bergantung kepada aliran ricihan yang telah berkembang penuh di belakang muka hadapan aliran. Orientasi ricihan adalah fungsi kadar ricihan yang mana berubah dengan saiz celah. Kadar ricihan adalah hampir sifar dalam kawasan bersebelahan dinding; adalah maksima berhampiran dinding dan adalah amat rendah dalam teras tengah.

Oleh itu taburan orientasi ricihan awal pada mana-mana lokasi tertentu dalam acuan secara kasar ditentukan oleh taburan kadar ricihan tempatan pada masa pengisian. Dengan demikian orientasi ricihan adalah uniarah dalam arah aliran. Orientasi ricihan awal mengalami relaksasi sebanyak beberapa darjah bergantung kepada kadar penyejukan dan spektra relaksasi. Menurut Tadmor lagi, taburan orientasi yang lengkap boleh dianggarkan dengan mensuperimposisikan orientasi-orientasi pemanjangan dan ricihan.

Keadaan orientasi gentian boleh diukur secara dua dimensi dengan menggunakan mikroskopi cahaya terpantul (Mlekusch *et al.*, 1999; Correa *et al.*, 1996), mikroskopi pengimbasan elektron atau mikroskopi pengimbasan akustik ataupun secara tiga dimensi dengan menggunakan radiografimikro, mikroskopi transmisi cahaya, mikroskopi pengimbasan laser konfokal, cara pemotongan optik dan kaedah-kaedah menggunakan gelombang mikro atau tomografi sinaran-X. Satu cara murah dan senang dengan kualiti yang setanding mikroskop pengimbasan elektron telah dilakukan oleh Mlekusch *et al.* (1999) dengan menggunakan mikroskop cahaya terpantul



Rajah 1.4: Skematik proses pengisian acuan menunjukkan deformasi elemen bendalir yang pada mulanya segiempat sama pada kedudukan-kedudukan berikutan dengan kemaraan hadapan aliran (Folkes,1982).

berpenganalisa imej dengan bantuan komputer. Morfologi kulit-teras juga diperhatikan oleh Dani dan Ogale (1996) untuk sampel Nilon 6.6 diperkuatkan gentian karbon pendek yang diacuan suntikkan. Sifat-sifat elektrik yang diuji juga didapati bergantung kepada taburan orientasi gentian.

Tancrez *et al.* (1996) mendapati orientasi gentian di dalam hasil bahan teracu suntikan memainkan peranan penting di dalam perkembangan tegasan dalaman. Orientasi secara membujur di dalam zon kulit merangsangkan perkembangan tegasan dalaman yang tinggi di dalam teras yang terorientasi secara melintang terhadap arah aliran. Di samping itu juga, orientasi secara tegak lurus di dalam zon teras memberikan kepekatan tegasan yang tinggi di persekitaran gentian dan juga suatu keadaan terikan satah yang pula menggalakkan fenomena retak halus .

1.4.3 Sifat-sifat mekanik plastik diperkuat gentian pendek.

Tancrez *et al.* (1996) dan Correa *et al.* (1996) menyatakan bahawa sifat-sifat mekanik TPDGP seperti yang telah disebutkan terdahulu bergantung kepada cara pemprosesan kerana ia melibatkan :

- i. taburan orientasi dan panjang gentian
- ii. darjah kehabluran dan kehadiran tegasan dalaman polimer
- iii. kehadiran rongga dan rekahan mikro

Darjah kehabluran serta saiz sferulit kawasan teras hasilan teracu didapati adalah jauh lebih tinggi daripada kawasan kulit. Darjah kehabluran yang tinggi memberikan kekuatan mekanik yang baik dan juga merupakan rintangan terhadap peresapan molekul kecil (Hedenqvist & Gedde, 1996). Pengukuhan polimer oleh pengisi menghasilkan dua jenis kecacatan berstruktur terutamanya di dalam zon teras iaitu rongga dan rekahan mikro. Tancrez *et al.* (1996) mendapati rongga untuk polipropilena diperkuat gentian kaca terjadi semasa proses kehabluran dan ia adalah disebabkan oleh kekurangan leburan polimer hasil dari pembekuan get yang terlalu awal. Justeru itu, ia dapat diatasi dengan perubahan pada rekabentuk get atau parameter penyuntikan.

Rekahan mikro bermula dari gentian-gentian melintang di dalam zon teras dan menunjukkan orientasi yang ketara. Ia berkembang secara tegak lurus terhadap arah aliran polimer disebabkan kehadiran tegasan dalaman teraruh secara terma dan ciri-ciri mikrostruktur ketara yang menghalang deformasi ricihan plastik.

Di samping itu, keadaan persekitaran seperti suhu, kelembapan, cahaya dan kimia juga memainkan peranan penting kerana ia mempengaruhi kadar dan magnitud penuaan polimer.

1.5 Poliamida

Poliamida pertama iaitu poliamida 6,6 telah dihasilkan oleh Syarikat E.I. duPont de Nemours and Co. pada tahun 1929 dan pertama kalinya disintesis pada tahun 1935. Pengeluaran secara komersil berlaku pada tahun 1938. Pasaran terbesar pada ketika itu merupakan sarung kaki wanita dan mencapai kejayaan besar buat pertama kalinya. Hakcipta terpelihara yang dimiliki syarikat berkenaan telah mendorong penyelidik Jerman di Syarikat I.G. Farbenindustrie untuk mencipta poliamida 6 pada tahun 1940. Semenjak itu, berbagai lagi jenis poliamida telah diterbitkan. Menurut laporan SPI, seribu juta paun poliamida telah dihasilkan pada tahun 1995 dan akan terus tumbuh dalam lingkungan 6 hingga 10% untuk tahun-tahun berikutnya (Saunders, 1973).

Pada masa kini, penggunaan poliamida telah meliputi segenap lapisan industri serta pasaran disebabkan oleh sifat-sifat kimia serta mekanik yang baik. Gred-gred berbeza dengan pencampuran bahan tambah direka untuk memenuhi keperluan-keperluan yang berbeza. Pada amnya polimida mempunyai rintangan haba dan kelesuan yang tinggi, koefisien geseran rendah, keliatan tinggi dan daya tahan terhadap minyak, bahn bakar dan bahan kimia (Rosato *et al.*, 1991). Sungguhpun demikian, poliamida mempunyai sifat penyerapan air ke tahap tertentu. Kebaikan atau keburukan sifat penyerapan air bergantung kepada jenis penggunaan (Ezrin, 1996).

Sifat-sifat tersebut dipertingkatkan lagi oleh penambahan bahan penguatan. Di samping itu kemudahan pemprosesan dengan mesin pemproses lazim juga telah menyumbang kepada kejayaan bahan tersebut. Contoh penggunaan poliamida dan juga kompositnya termasuklah alas pembebanan, bearing, gear, manifold aliran angin kenderaan dan juga bahagian-bahagian anti geseran, bahagian-bahagian elektrik yang terdedah kepada suhu tinggi; bahagian mekanik yang terdedah terhadap hidrokarbon